

DOCKET NO.: 266364US0PCT

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF: Kenzi SUZUKI, et al.

SERIAL NO.: NEW U.S. PCT APPLICATION

FILED: HERewith

INTERNATIONAL APPLICATION NO.: PCT/JP03/10497

INTERNATIONAL FILING DATE: August 20, 2003

FOR: INORGANIC COMPOUND CONTAINING ACTIVE OXYGEN AND PROCESS FOR PRODUCING THE SAME

**REQUEST FOR PRIORITY UNDER 35 U.S.C. 119
AND THE INTERNATIONAL CONVENTION**Commissioner for Patents
Alexandria, Virginia 22313

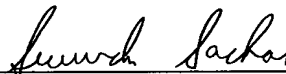
Sir:

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicant claims as priority:

<u>COUNTRY</u>	<u>APPLICATION NO</u>	<u>DAY/MONTH/YEAR</u>
Japan	2002-240374	21 August 2002
Japan	2002-246318	27 August 2002

Certified copies of the corresponding Convention application(s) were submitted to the International Bureau in PCT Application No. PCT/JP03/10497. Receipt of the certified copy(s) by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.

Respectfully submitted,
OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,
MAIER & NEUSTADT, P.C.



Norman F. Oblon
Attorney of Record
Registration No. 24,618
Surinder Sachar
Registration No. 34,423

Customer Number

22850

(703) 413-3000
Fax No. (703) 413-2220
(OSMMN 08/03)

10/524833
Rec'd PCT/PTG 18 FEB 2005
PCT/JP 03/10497

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

19.09.03

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日
Date of Application: 2 0 0 2 年 8 月 2 1 日

REC'D 06 NOV 2003

出 願 番 号
Application Number: 特 願 2 0 0 2 - 2 4 0 3 7 4
[ST. 10/C]: [J P 2 0 0 2 - 2 4 0 3 7 4]

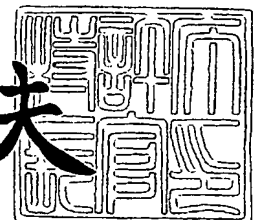
出 願 人
Applicant(s): 独立行政法人産業技術総合研究所

PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2 0 0 3 年 1 0 月 2 3 日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今 井 康 夫



BEST AVAILABLE COPY

【書類名】 特許願
【整理番号】 336N02103
【提出日】 平成14年 8月21日
【あて先】 特許庁長官 殿
【国際特許分類】 C01B 33/26
A01N 59/06
B01J 23/02
H01M 4/86

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県名古屋市守山区大字下志段味字穴ヶ洞 2 2 6 6 番
地の 9 8 独立行政法人産業技術総合研究所中部センタ
ー内

【氏名】 鈴木 憲司

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県名古屋市守山区大字下志段味字穴ヶ洞 2 2 6 6 番
地の 9 8 独立行政法人産業技術総合研究所中部センタ
ー内

【氏名】 藤田 悟

【特許出願人】

【識別番号】 301021533

【氏名又は名称】 独立行政法人産業技術総合研究所

【代表者】 吉川 弘之

【連絡先】 部署名 独立行政法人産業技術総合研究所 産学官連携
部門中部産学官連携センター 担当者 中田正人 電
話番号 0 5 2 - 7 3 6 - 7 0 6 5

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 活性酸素を包含した無機化合物及びその製造法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 活性酸素発現機構を有する活性酸素を包含あるいは吸蔵した無機化合物であって、スーパーオキシドアニオン (O_2^-) 及びパーオキシドアニオン (O_2^{2-}) の両者を包含あるいは吸蔵していることを特徴とする無機化合物。

【請求項 2】 上記無機化合物が、 $Ca_{12}(Al_{14-x}Si_x)O_{33+0.5x}$ の組成式を有するアルミノシリケートであることを特徴とする請求項 1 に記載の無機化合物。

【請求項 3】 上記アルミノシリケートの組成式 $Ca_{12}(Al_{14-x}Si_x)O_{33+0.5x}$ の X 値が $0 < X \leq 4$ の範囲であることを特徴とする請求項 2 に記載の無機化合物。

【請求項 4】 請求項 1 に記載の無機化合物を製造する方法であって、ハイドロガーネットを $700^\circ C$ 以上 $1200^\circ C$ 以下で加熱することにより活性酸素発現機構を有するアルミノシリケートを製造することを特徴とする無機化合物の製造方法。

【請求項 5】 ハイドロガーネットの組成式が、 $Ca_3Al_2(SiO_4)_{3-Y}(OH)_Y$ であり、Y 値が $0 \leq Y < 3$ の範囲であることを特徴とする請求項 4 に記載の方法。

【請求項 6】 請求項 1 に記載の無機化合物からなることを特徴とする酸化触媒。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、活性酸素を包含した無機化合物及びその製造法に関するものであり、更に詳しくは、スーパーオキシドアニオン (O_2^-) 及びパーオキシドアニオン (O_2^{2-}) の両者を包含あるいは吸蔵している新規活性酸素発現物質とその製造方法及びその用途に関するものである。本発明の活性酸素発現物質は、例えば

、酸化触媒、固体電解質燃料電池用電極、抗菌剤、イオン伝導体などの構成成分として有用である。

【0002】

【従来の技術】

従来、活性酸素発現物質として知られ、実用化されている物質としては、酸化チタンに代表される光触媒がある。光（紫外線）が酸化チタンに吸収されると、電子と正孔が形成される。酸化チタンの場合、励起電子による還元力よりも正孔による酸化力が大きいいため、触媒表面の吸着水が正孔によって酸化され、ヒドロキシラジカル（ $\cdot\text{OH}$ ）が生成する。その一方において、空気中の酸素の還元反応が進行し、活性酸素（ O_2^- ）が生成される。活性酸素は、酸化反応の中間体に付いて過酸化物の形成あるいは過酸化水素（ H_2O_2 ）を経て水になると考えられている。また、活性酸素は、炭素—炭素結合に直接作用して有機系有害物質を分解する場合もある。

【0003】

活性酸素を発現する他の物質としては、 $12\text{CaO} \cdot 7\text{Al}_2\text{O}_3$ が知られている（特開 2002-3218、「活性酸素種を包接する $12\text{CaO} \cdot 7\text{Al}_2\text{O}_3$ 化合物およびその製造方法」）。この $12\text{CaO} \cdot 7\text{Al}_2\text{O}_3$ 化合物は、カルシウムとアルミニウムを原子当量比で 12:14 とした混合原料を用い、酸素分圧 10^4 Pa 以上、好ましくは 10^5 Pa 以上、水蒸気分圧 1 Pa 以下に制御した乾燥酸化雰囲気中で、焼成温度 1200°C 以上、好ましくは 1300°C の高温の条件下で固相反応させることにより製造される。酸素分圧及び水蒸気分圧が精密に管理された雰囲気下で、多量の熱エネルギーを要して製造される $12\text{CaO} \cdot 7\text{Al}_2\text{O}_3$ 化合物が包接する活性酸素は、 O_2^- 及び／又は O^- である。

【0004】

しかしながら、この種の活性酸素発現物質については、従来、スーパーオキシドアニオン（ O_2^- ）及びパーオキシドアニオン（ O_2^{2-} ）の両者を包含あるいは吸蔵する無機化合物は知られておらず、唯一、上述のチタニア等の光触媒や $12\text{CaO} \cdot 7\text{Al}_2\text{O}_3$ 化合物等でスーパーオキシドの生成が知られてい

るのみであった。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】

このような状況の中で、本発明者らは、上記従来技術に鑑みて、チタニア等の光触媒や $12\text{CaO} \cdot 7\text{Al}_2\text{O}_3$ 化合物が発現することで知られる O_2^- 及び O^- 等の活性酸素種よりも更に強い酸化力を有する O_2^{2-} を物質の構造中に包含又は吸蔵することを特徴とする新規活性酸素発現物質を開発することを目標として鋭意研究を積み重ねた結果、 $\text{Ca}_{12}(\text{Al}_{14-x}\text{Si}_x)\text{O}_{33+0.5x}$ と表記されるアルミノシリケートがスーパーオキサイドアニオン (O_2^-) 及びパーオキサイドアニオン (O_2^{2-}) の両者を包含あるいは吸蔵することを初めて見出し、本発明を成すに至った。

【0006】

本発明は、強い酸化力を有するスーパーオキサイドアニオン (O_2^-) 及びパーオキサイドアニオン (O_2^{2-}) の両者を包含あるいは吸蔵する新規活性酸素発現物質及び当該活性酸素発現物質の製造方法を提供することを目的とするものである。

また、本発明は、 O_2^{2-} 等の活性酸素を物質の構造中に包含又は吸蔵することを特徴とする新規活性酸素発現物質を提供することを目的とするものである。

更に、本発明は、構造中に O_2^- (スーパーオキサイドアニオン) 及び O_2^{2-} (パーオキサイドアニオン) を包含又は吸蔵する新規活性酸素発現物質であるアルミノシリケートを提供することを目的とするものである。

【0007】

【課題を解決するための手段】

上記課題を解決するための、本発明は、以下の技術的手段から構成される。

(1) 活性酸素発現機構を有する活性酸素を包含あるいは吸蔵した無機化合物であって、スーパーオキサイドアニオン (O_2^-) 及びパーオキサイドアニオン (O_2^{2-}) の両者を包含あるいは吸蔵していることを特徴とする無機化合物。

(2) 上記無機化合物が、 $\text{Ca}_{12}(\text{Al}_{14-x}\text{Si}_x)\text{O}_{33+0.5x}$ の組成式を有するアルミノシリケートであることを特徴とする前記 (1) に記載の無機化合物。

(3) 上記アルミノシリケートの組成式 $\text{Ca}_{12}(\text{Al}_{14-x}\text{Si}_x)\text{O}_{33+0.5x}$ の X 値が $0 < X \leq 4$ の範囲であることを特徴とする前記 (2) に記載の無機化合物。

(4) 前記 (1) に記載の無機化合物を製造する方法であって、ハイドロガーネットを 700°C 以上 1200°C 以下で加熱することにより活性酸素発現機構を有するアルミノシリケートを製造することを特徴とする無機化合物の製造方法。

(5) ハイドロガーネットの組成式が、 $\text{Ca}_3\text{Al}_2(\text{SiO}_4)_{3-Y}(\text{OH})_{4Y}$ であり、Y 値が $0 \leq Y < 3$ の範囲であることを特徴とする前記 (4) に記載の方法。

(6) 前記 (1) に記載の無機化合物からなることを特徴とする酸化触媒。

【0008】

【発明の実施の形態】

本発明の新規活性酸素発現物質の製造法は、酸素分圧や水蒸気分圧の制御を必要とせず、加熱温度も 1000°C 以下の比較的低温でよく、以下に、その製造例を説明する。しかし、これにより、本発明の新規活性酸素発現物質の製造法は、以下の方法のみに限定されるものではない。本発明の活性酸素発現物質は、前駆物質としてハイドロガーネットを使用し、それを空気雰囲気下の電気炉等で 700°C 以上で加熱することにより製造される。前駆体として使用されるハイドロガーネットの化学組成式は、 $\text{Ca}_3\text{Al}_2(\text{SiO}_4)_{3-Y}(\text{OH})_{4Y}$ であり、Y 値が $0 \leq Y < 3$ の範囲であることを特徴とする。

【0009】

一方、新規活性酸素発現機能を有するアルミノシリケートの化学組成は $\text{Ca}_{12}(\text{Al}_{14-X}\text{Si}_X)\text{O}_{33+0.5X}$ と表記され、X の値は $0 < X \leq 4$ の範囲をとる。X = 4 のときの化学組成は $\text{Ca}_{12}(\text{Al}_{10}\text{Si}_4)\text{O}_{35}$ となり、 $\text{Ca}_{12}(\text{Al}_{10}\text{Si}_4)\text{O}_{35}$ を合成する場合、前駆物質のハイドロガーネットの組成は $\text{Ca}_3\text{Al}_2(\text{SiO}_4)_{0.8}(\text{OH})_{8.8}$ (Y = 2.2) である。ハイドロガーネットの合成法は、最初にカルシア源、アルミナ源、シリカ源をハイドロガーネットの組成、即ち、希望する Y 値のハイドロガーネットの組成に合わせて混合し、それに過剰の水を添加した混合物を調製する。

【0010】

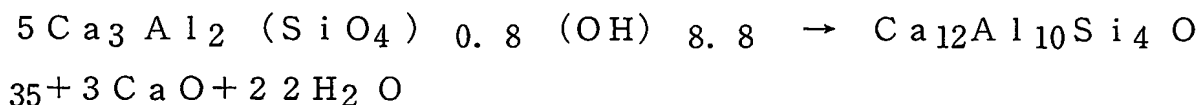
ここで、カルシア源には消石灰、生石灰、炭酸カルシウム、石膏等、アルミナ源にはカオリン、アルミナゾル、ペーマイト、水酸化アルミニウム、酸化アルミニウム等、シリカ源にはカオリン、シリカ、非晶質シリカ、珪藻土、ケイ砂、石英等を用いることができる。調製した混合物をオートクレーブにて100℃から200℃の温度で5時間以上、水熱処理を施すことによりハイドロガーネットが合成される。100℃以下の温度では反応が十分に進行せず、一方、200℃以上では余分な熱エネルギーを消費することになる。加熱時間は5時間より短くても良いが、結晶性の良いハイドロガーネットを得るには5時間以上が好適である。

【0011】

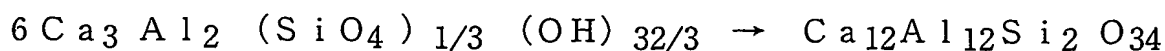
更に、ハイドロガーネットを空気雰囲気にて700℃以上1200℃以下で加熱することにより新規活性酸素発現物質であるアルミノシリケートを得ることができる。700℃より低い温度で加熱すると熱分解が不十分であり好ましくない。また、それより高い温度で加熱しても良いが、余分な熱エネルギーを消費することになるので1200℃以下とする。上記方法で合成したハイドロガーネットを加熱することにより、本発明の新規活性酸素発現物質であるアルミノシリケートを得ることができる。一例として、 $X=4$ 及び $X=2$ の場合について示す。

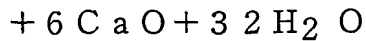
【0012】

$\text{Ca}_{12}\text{Al}_{10}\text{Si}_4\text{O}_{35}$ ($X=4$) を合成するための前駆物質であるハイドロガーネットの組成式は $\text{Ca}_3\text{Al}_2(\text{SiO}_4)_{0.8}(\text{OH})_{8.8}$ ($Y=2.2$) であり、その700℃での熱分解は、以下に示される。



また、 X の中間値に相当する $\text{Ca}_{12}\text{Al}_{12}\text{Si}_2\text{O}_{34}$ ($X=2$) を合成するための前駆物質であるハイドロガーネットの組成式は $\text{Ca}_3\text{Al}_2(\text{SiO}_4)_{1/3}(\text{OH})_{32/3}$ ($Y=8/3$) であり、その700℃での熱分解は、以下に示される。





【0013】

上記の反応式で得られる $\text{Ca}_{12}\text{Al}_{10}\text{Si}_4\text{O}_{35}$ 、 $\text{Ca}_{12}\text{Al}_{12}\text{Si}_2\text{O}_{34}$ 等が、本発明の新規活性酸素発現物質であるアルミノシリケートの一例である。本発明の新規活性酸素発現物質は、 $0 < X \leq 4$ の範囲で得られ、その前駆物質であるハイドロガーネットの熱分解により生成されるものである。なお、熱分解式から分かる通り、生石灰 (CaO) が副生物として混在するが、生石灰は、活性酸素の発現及び包含には寄与しない。 CaO は、塩酸や硝酸等の希酸で溶解させることにより容易に除去することが出来る。

【0014】

上記ハイドロガーネットの熱分解物、即ち、新規活性酸素発現物質であるアルミノシリケートが、スーパーオキシドアニオン (O_2^-) 及び/又はパーオキシドアニオン (O_2^-) 等の活性酸素を包含又は吸蔵するか否かを調べる手段としては、ESR測定法あるいはラマン分光測定法がある。一例として、後記する実施例に示した $\text{Ca}_{12}\text{Al}_{10}\text{Si}_4\text{O}_{35}$ の室温におけるESRおよびラマン分光測定の結果を説明すると、まず、ESR測定結果を図1に示す。 $g_1 = 2.049 \text{ mT}$ に発現するスペクトルは、スーパーオキシドアニオンの存在を示す。図2は、室温におけるラマン分光測定結果を示す。ESR測定と同様に、スーパーオキシドアニオンの存在が 1075 cm^{-1} のピークから確認される。

【0015】

図1及び図2のいずれの結果も $\text{Ca}_{12}\text{Al}_{10}\text{Si}_4\text{O}_{35}$ がスーパーオキシドアニオンを構造中に包含又は吸蔵していることを表している。更に、 $\text{Ca}_{12}\text{Al}_{10}\text{Si}_4\text{O}_{35}$ のラマン分光測定結果より、明確なピークが 1075 cm^{-1} のほか、に 853 cm^{-1} に認められる。前者はスーパーオキシドアニオン、後者はパーオキシドアニオン由来のピークに相当する。以上の結果は、本発明の新規活性酸素発現物質が、構造中にスーパーオキシドアニオン及びパーオキシドアニオンを包含又は吸蔵していることを結論する。

【0016】

$\text{Ca}_{12}\text{Al}_{10}\text{Si}_4\text{O}_{35}$ の結晶構造を図3に示す。 $\text{Ca}_{12}\text{Al}_{10}\text{Si}_4\text{O}_{35}$ の

構造は、立方晶系、格子定数： $a = 12.0116 \text{ \AA}$ 、空間群： $I 43d$ である。その構造は、 $(Al, Si)O_4$ 四面体がフレームワーク状に形成されたゼオライト様構造を有し、そのフレームワーク中の空隙（約 4 \AA 程度の空間）に活性酸素の O_2^- 及び O_2^{2-} が存在する。

【0017】

本発明の新規活性酸素発現物質であるアルミノシリケートが包含又は吸蔵する活性酸素は、強い酸化力を有しており、 400°C 以上に加熱すると構造内部から排出され、化学反応等に寄与する。換言すると、本発明の新規活性酸素発現物質が包含又は吸蔵する活性酸素は、 400°C 以上の温度で移動可能である。例えば、新規活性酸素発現物質は、 $400 \sim 600^\circ\text{C}$ の低い温度で揮発性有機化合物（VOCs）を CO_2 や H_2O にまで完全酸化分解する能力を有する。このことから、本発明の活性酸素発現物質は、酸化触媒の有効成分として使用することができる。

【0018】

無酸素雰囲気下で酸化分解反応を持続させると構造中の活性酸素は徐々に消費され、反応が長時間続くと活性酸素は消費されてしまい、それ以後は供給されなくなる。しかし、活性酸素が供給されなくなった後、新規活性酸素発現物質に空気あるいは酸素を供給すると、構造中に再び活性酸素が再生されて強い酸化能力が回復するという特異な性質を有する。実験による結果を図4に示す。したがって、VOCs等の酸化分解反応時に空気あるいは酸素を供給し続けるならば、新規活性酸素発現物質からの活性酸素供給は絶えることがない。

【0019】

スーパーオキシドアニオン及びパーオキシドアニオンは、共に強い酸化作用を有することから、VOCs等の有害化学物質を分解することが可能であり、例えば、環境分野でこれらの有害化学物質を酸化分解する方法としての用途が期待される。更に、消費された活性酸素（スーパーオキシドアニオン及びパーオキシドアニオン）は、本発明の新規活性酸素発現物質の構造内で再生されるため、永久に使用できるという特長を有する。

【0020】

【実施例】

次に、実施例により本発明を具体的に説明するが、本発明は以下の実施例により何ら限定されるものではない。

実施例 1

カルシア源として消石灰 0.77 g、アルミナ源としてアルミナゾル (Al_2O_3 としての含有量; 20%) 1.8 g、シリカ源として非晶質シリカ 0.21 g を秤量し、全容積が 14.6 ml になるように水を添加して混合物 (懸濁液) を調製した。懸濁液を容量 25 ml のオートクレープに入れ、25 rpm で攪拌しながら 200℃、15 時間加熱した。その後、室温まで放冷し、ろ過、乾燥することにより $\text{Ca}_3\text{Al}_2(\text{SiO}_4)_0.8(\text{OH})_{8.8}$ の組成式で表されるハイドロガーネットを合成した。本ハイドロガーネットを空気雰囲気下の電気炉で 700℃、5 時間加熱することにより新規活性酸素発現物質である $\text{Ca}_{12}\text{Al}_{10}\text{Si}_4\text{O}_{35}$ を合成した。本製造法による $\text{Ca}_{12}\text{Al}_{10}\text{Si}_4\text{O}_{35}$ の室温における ESR 及びラマン分光測定の結果を図 1 及び図 2 に示す。前述したように、 $\text{Ca}_{12}\text{Al}_{10}\text{Si}_4\text{O}_{35}$ は、活性酸素を構造中に包含又は吸蔵していることが確認された。

【0021】**実施例 2**

粒径 300~500 μm のペレットに成形した $\text{Ca}_{12}\text{Al}_{10}\text{Si}_4\text{O}_{35}$ の 1.0 g を電気炉に設置された石英ガラス製反応管に充填し、反応管温度を 200~900℃ の希望する温度にした。空気とプロピレンの混合ガスを流量 100 ml/min で反応管に導入した。なお、プロピレン濃度は 1000 ppm とした。反応管の出口ガスをガスクロマトグラフィーに導入し、ガス分析を行った。200~375℃ ではプロピレンの分解は確認されず、400℃ で 2% の分解率が認められ、分解率は、反応温度が高くなると共に上昇し、500℃ で 50%、550℃ で 95%、600℃ 以上で 100% であった。プロピレンが分解して生成するガスは、 CO_2 及び H_2O のみであり、プロピレンの酸化分解反応が起きていることが示された。

【0022】

実施例 3

粒径 $300 \sim 500 \mu\text{m}$ のペレットに成形した $\text{Ca}_{12}\text{Al}_{10}\text{Si}_4\text{O}_{35}$ の 1.0 g を電気炉に設置された石英ガラス製反応管に充填し、反応管温度を $200 \sim 900^\circ\text{C}$ の希望する温度にした。空気とベンゼンの混合ガスを流量 100 ml/min で反応管に導入した。なお、ベンゼン濃度は 1000 ppm とした。反応管の出口ガスをガスクロマトグラフィーに導入し、ガス分析を行った。 $200 \sim 400^\circ\text{C}$ でベンゼンの分解は確認されず、 425°C で 3% の分解率が認められ、分解率は、反応温度が高くなると共に上昇し、 450°C で 10% 、 500°C で 37% 、 550°C で 86% 、 600°C で 98% 、 625°C 以上で 100% であった。ベンゼンが分解して生成するガスは、 CO_2 、 CO 及び H_2O のみであり、ベンゼンの酸化分解反応が起きていることが示された。

【0023】

実施例 4

粒径 $300 \sim 500 \mu\text{m}$ のペレットに成形した $\text{Ca}_{12}\text{Al}_{10}\text{Si}_4\text{O}_{35}$ の 1.0 g を電気炉に設置された石英ガラス製反応管に充填し、反応管温度を 600°C とした。窒素とプロピレンの混合ガスを流量 50 ml/min で反応管に導入した。なお、プロピレン濃度は 100 ppm とした。反応管の出口ガスをガスクロマトグラフィーに導入し、ガス分析を行った。プロピレン分解率と反応時間の関係を測定した。その結果を図 4 に示す。初期における分解率は、 80% が得られたが、時間と共に減少し、 120 分後には 0% となり、それ以降はプロピレンの酸化分解は起こらなかった。図 5 は、各反応時間における窒素雰囲気中のプロピレン分解後に得られた $\text{Ca}_{12}\text{Al}_{10}\text{Si}_4\text{O}_{35}$ 中の活性酸素のラマン分光結果を示す。プロピレンの燃焼に伴って構造中の活性酸素が減少する。更に、活性酸素を失った $\text{Ca}_{12}\text{Al}_{10}\text{Si}_4\text{O}_{35}$ を、 400°C 以上で空気に曝すことにより構造中に活性酸素が再生されることが確認された。酸化反応によって消費された格子中の活性酸素は、再度、空気中の酸素を取り込み、活性酸素として再生され、プロピレンを燃焼し続けられることが示された。

【0024】

【発明の効果】

本発明は、活性酸素（スーパーオキシド： O_2^- 、パーオキシド： O_2^{2-} ）をカプセル化したゼオライト様構造を有するアルミノシリケート、即ち、新規活性酸素発現物質に係るものである。構造中に包含あるいは吸蔵された活性酸素により炭化水素酸化反応（例えば、エポキシ化・完全酸化・部分酸化、カップリング）が生じ、本発明の新規活性酸素発現物質は、環境・エネルギー・化学工業（製造プロセス）等、広い分野で利用される。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

$Ca_{12}Al_{10}Si_4O_{35}$ の室温における ESR 測定結果を示す。

【図 2】

$Ca_{12}Al_{10}Si_4O_{35}$ の室温におけるラマン分光測定結果を示す。

【図 3】

$Ca_{12}Al_{10}Si_4O_{35}$ の結晶構造を示す。

【図 4】

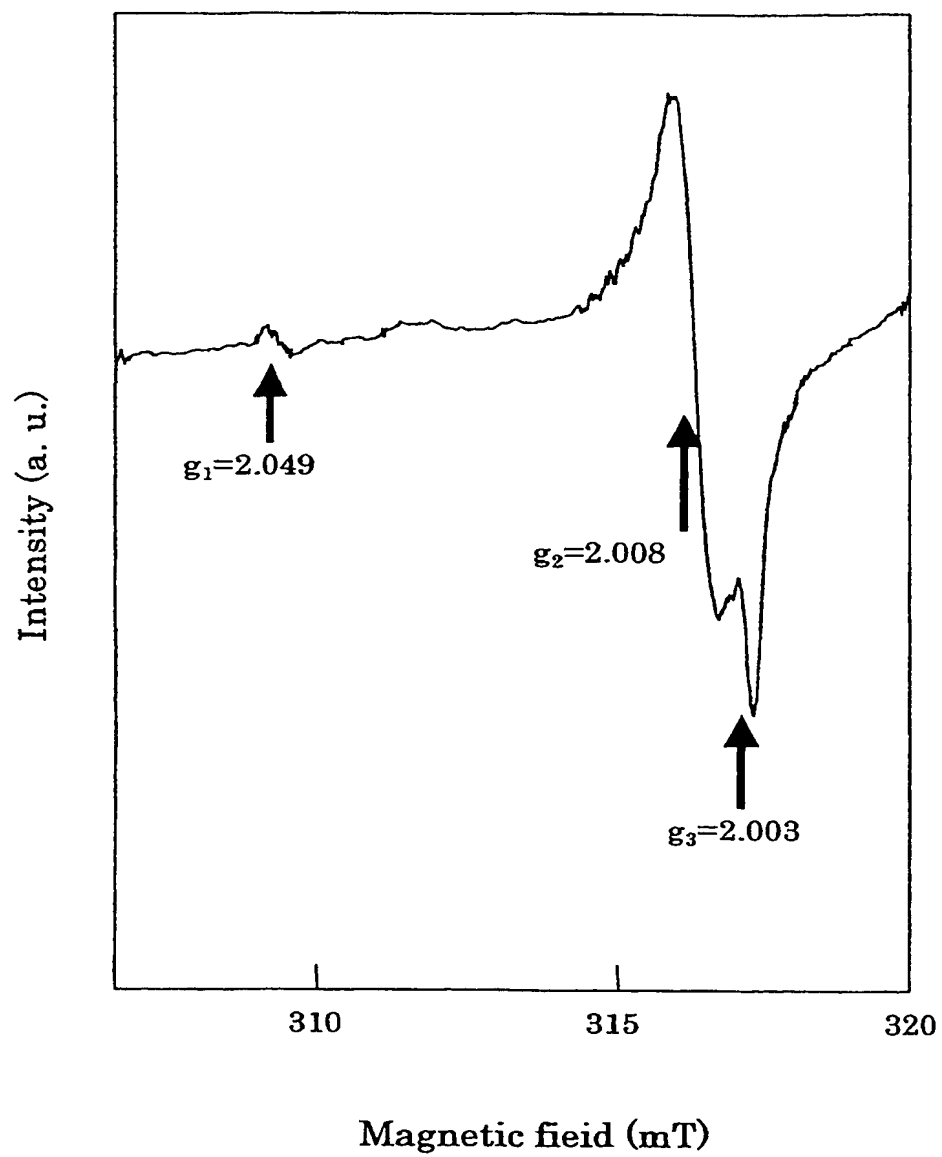
$Ca_{12}Al_{10}Si_4O_{35}$ を触媒とした窒素雰囲気（a）でのプロピレン分解率と反応時間の関係を示す。（反応開始 220 分後に空気を導入（b）し、 $Ca_{12}Al_{10}Si_4O_{35}$ 中の消費された活性酸素を再生した後、再度、窒素雰囲気でのプロピレン酸化分解を実施）

【図 5】

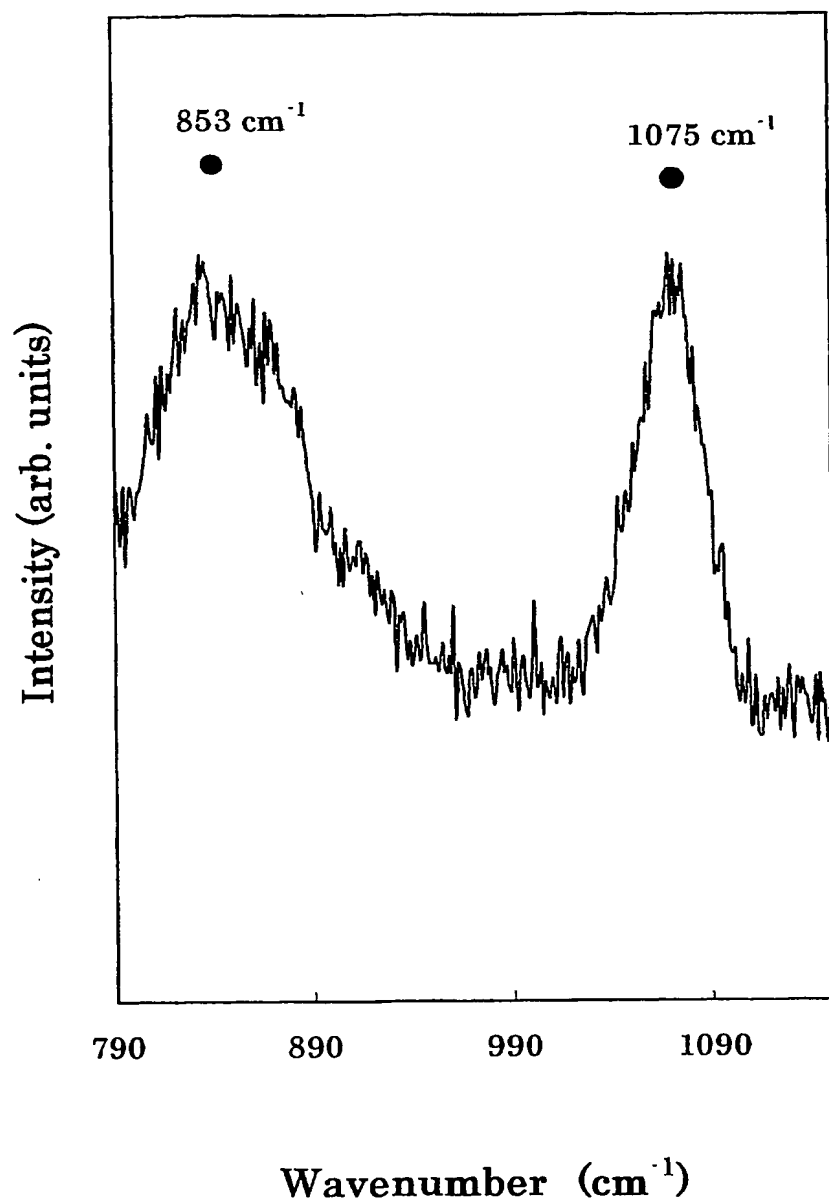
窒素雰囲気におけるプロピレン分解実験後の $Ca_{12}Al_{10}Si_4O_{35}$ のラマン分光測定結果を示す。

【書類名】 図面

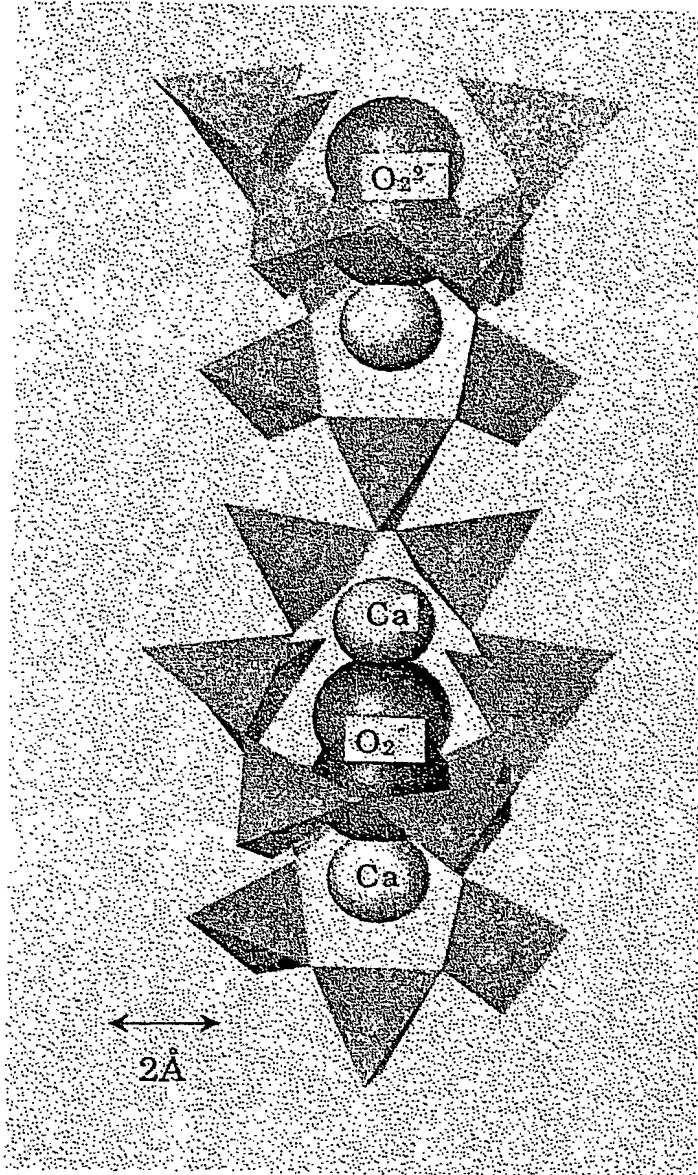
【図 1】



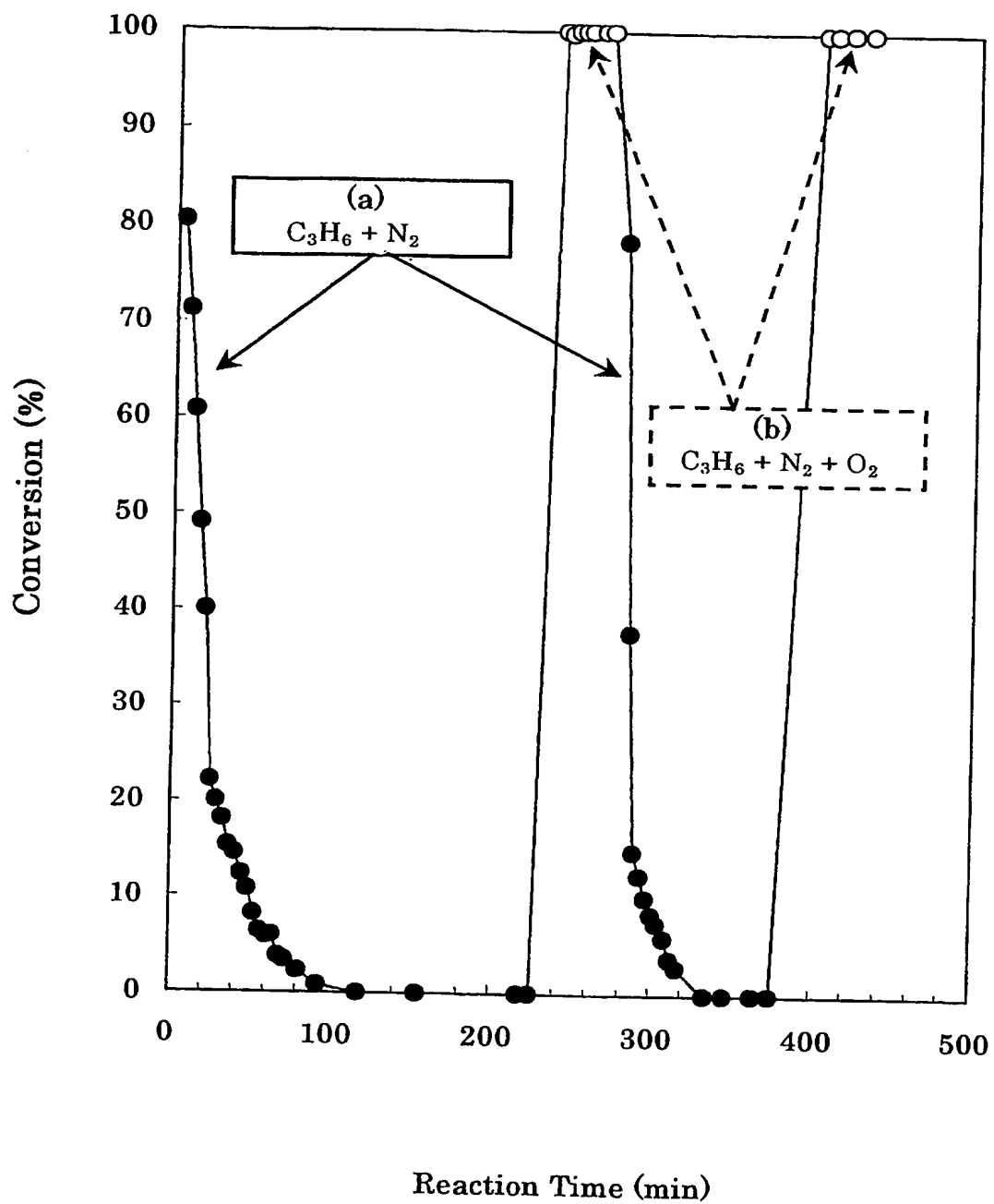
【図 2】



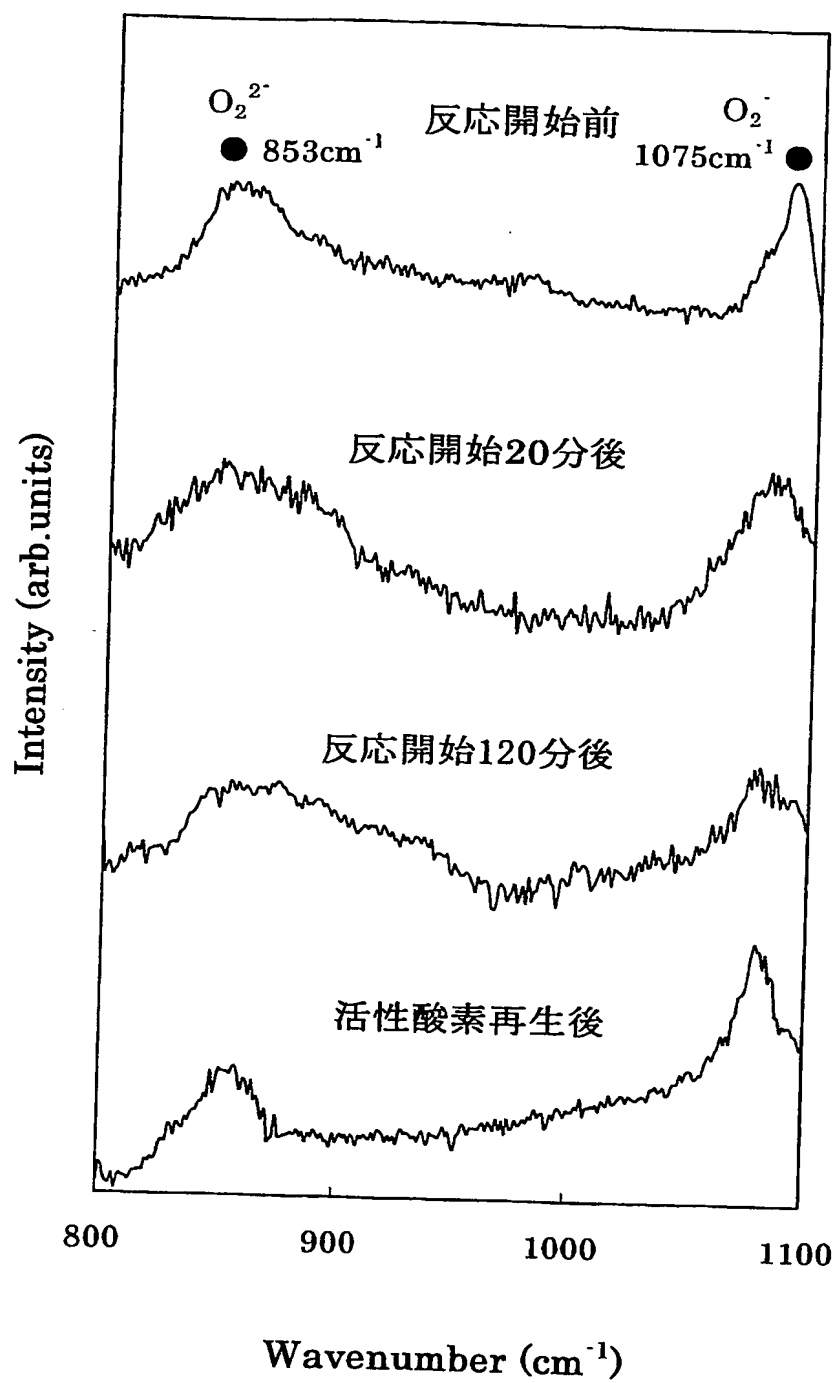
【図 3】



【図 4】



【図 5】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 新規活性酸素発現物質及びその製造方法を提供する。

【解決手段】 前駆物質としてハイドロガーネットを水熱法にて合成し、それを700℃以上で加熱することにより得られるアルミノシリケートからなる新規活性酸素発現物質であり、その化学組成は $\text{Ca}_{12}(\text{Al}_{14-X}\text{Si}_X)\text{O}_{33+0.5X}$ と表記され、化学組成中のX値は $0 < X \leq 4$ の範囲をとる。

【効果】 この新規活性酸素発現物質は、例えば、酸化触媒、固体電解質燃料電池用電極、抗菌剤、イオン伝導体の構成成分として有用である。

【選択図】 なし

特願 2002-240374

出願人履歴情報

識別番号

[301021533]

1. 変更年月日

2001年 4月 2日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都千代田区霞が関1-3-1

氏 名

独立行政法人産業技術総合研究所

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.